



TITLE:

原子間力顕微鏡を用いた有機半導体グレイン／電極界面の局所電気特性評価(Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

木村, 知玄

CITATION:

木村, 知玄. 原子間力顕微鏡を用いた有機半導体グレイン／電極界面の局所電気特性評価. 京都大学, 2016, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2016-03-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k19715>

RIGHT:

許諾条件により本文は2017-03-23に公開

京都大学	博士（工学）	氏名	木 村 知 玄
論文題目	原子間力顕微鏡を用いた有機半導体グレイン／電極界面の局所電気特性評価		
<p>（論文内容の要旨）</p> <p>軽量・可とう性を活かした新規デバイスを目指す有機エレクトロニクスにおける研究が盛んに行われている。その中核デバイスの一つである有機薄膜トランジスタの性能向上・制御のためには、金属-有機半導体薄膜の界面電子物性の影響を考慮する必要があり、有機半導体薄膜のモルフォロジーの影響を排除した、単一の有機半導体グレインと電極との界面についての電気特性評価が不可欠となる。原子間力顕微鏡は局所構造評価に極めて有用な手法であるが、有機グレインを対象とした電子物性測定に関する研究は十分ではなく、評価手法における課題も多々存在する。</p> <p>本論文は、原子間力顕微鏡の応用手法の開発と、その応用手法を用いた有機半導体グレイン/電極界面に注目した局所電気特性評価を行った結果をまとめたものであり、全6章からなっている。</p> <p>第1章は序論であり、現代のエレクトロニクスにおける有機エレクトロニクスの位置づけと、その動作を担う有機薄膜トランジスタに関する研究の現状が示されている。その上で、有機薄膜トランジスタの実用化に向けての課題である金属-有機界面物性に関して、様々な影響とこれまでの理解がまとめられている。これを踏まえ、モルフォロジーの影響を排除した金属-有機界面物性評価に向けた原子間力顕微鏡技術の確立を目的として述べている。</p> <p>第2章では本論文における研究の主体である原子間力顕微鏡について、その要素技術および従来手法について記述されている。まず個々の従来手法の詳細を述べる前に、探針の動作という点に加えて、その走査という点についても体系的にまとめており、本論文のトピックスの一つである Point-by-point (各点測定) 法と従来方式との対応が述べられている。また、従来手法が電流検出と静電気力検出という2つの点で説明されており、本論文で提案・開発している複数の応用手法との関係が第2章で述べられている。特に、従来の電流検出法での課題と未達成の領域についての記述、および従来の静電気力検出からの展開についての言及は、第3章以降を議論する上で重要な視点となっている。</p> <p>第3章では従来の原子間力顕微鏡による電流測定法を改善し、有機薄膜トランジスタの局所電気特性測定を行った結果について述べられている。まず従来手法である点接触電流イメージング原子間力顕微鏡 (PCI-AFM) の真空動作化や探針電流測定における最適なパラメータ設定に向けた理論・実践的検討を行うことで、後の評価の信頼性を確保している。評価では、まず有機半導体のマルチグレイン薄膜において測定を行い、初の試みである真空中での局所トランジスタ特性の測定に成功している。また、単一グレイン境界という大面積電極を用いた評価ではアプローチ困難な局所構造において、有機トランジスタのしきい値電圧へ影響することを直接可視化した。以上の評価を通して PCI-AFM の有効性を示した上で、単一グレイン上で探針-電極間距離に依存する電気特性評価を進めている。ここで、探針-電極間の電流経路が平行でないことから、従来の距離依存性評価法であるトランスファーライン法を使用できるかについて数値計算を用いた検証を行っている。その上で距離依存解析を行い、単一グレインの移動度を抽出し、グレイン境界や寄生抵抗を排除してもなお小さい移動度となりうる</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	木 村 知 玄
<p>ことを指摘している。一方で、電流測定法では探針接触抵抗が顕著となることを見出し、金属-有機界面評価には非直接的な電気特性評価手法の構築が必要であることを示し、第3章を締めている。</p> <p>第4章では第3章を踏まえた間接的な局所電気特性評価法の開発と、新規手法を用いた実際の金属-有機界面物性評価について記述されている。新規手法である周波数変調走査インピーダンス顕微鏡(FM-SIM)の動作原理を説明し、電極に接続したグレインでの測定結果と等価回路モデルから、測定量が局所的な交流電圧の振幅・位相を正しく反映していることを示した。その等価回路モデルをベースに、従来手法であるインピーダンス分光の観点を取り入れることで、金属-有機界面インピーダンスの回路定数を抽出・評価する新規解析法を構築した。新規解析法を適用した結果、金-単一ペンタセングレイン界面が抵抗/容量並列回路で記述できること、およびそれが電極-単一グレイン界面一般に適用できることを示した。界面インピーダンス評価の応用として、有機トランジスタの電極表面を自己組織化単分子膜(SAM)で修飾することで移動度が向上する要因の直接評価を行っている。まずデバイス動作中の電位とドレイン電流の同時測定により、デバイス ON 状態ではソース電極-チャネル界面がデバイスの電気特性を支配していることを示した。ソース電極-チャネル界面に注目し、FM-SIMにより界面インピーダンスを評価することで、SAM修飾により界面導電性が向上することを直接観測した。さらに、界面容量の評価から、SAM修飾により金属-有機界面におけるトラップが抑制されていることを示し、SAM修飾による有機トランジスタの性能改善の要因を解明している。</p> <p>第3・4章では定常応答の測定結果について述べているのに対し、有機トランジスタのチャネル形成過程の時間的変化測定や、より詳細な局所抵抗評価に向けて、第5章では動的な界面電気特性の評価法の構築・評価結果に関して述べられている。第3章と同じく Point-by-point 技術を活かした局所電位の時間分解測定システムを構築し、単一のペンタセングレインへのキャリア注入・排出過程を 50 nm 以下の空間分解能、1 ms オーダの時間分解能での可視化を達成している。特に、キャリア排出に対し注入時の接触抵抗が大きくなることが電極-グレイン界面一般に適用できることを見出し、これまで一般的に用いられるエネルギーダイアグラムによる説明が電極-グレイン界面においても成立することを立証した。さらに、第4章で開発した新規手法と組み合わせることで、グレイン内部の微小な抵抗やチャネル導通領域の可視化など単一グレイン内の伝導の詳細についての評価に繋がられることを提起した。</p> <p>第6章は結論であり、本論文で得られた成果について要約してあり、それらを踏まえた新規手法の今後の展開について述べられている。</p>			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、有機薄膜トランジスタ (OFET) における金属-有機界面の局所電気特性について、従来の原子間力顕微鏡 (AFM) を発展させた応用手法の開発および評価に関する研究を行った成果についてまとめたものであり、得られた主な成果は以下のとおりである。

1. 従来手法を改善し、OFET の局所電気特性評価に特化した AFM 電流測定法を構築した。本手法を用いることで単一グレイン境界において OFET のしきい値電圧を増加させる影響を直接観測した。また、単一グレインにおける測定では、初めて 100 nm 以下のスケールでの単一グレイン上距離依存性電流特性計測に成功し、単一グレインの移動度評価を行った。

2. 金属-有機界面の局所インピーダンス評価のための新規 AFM 応用手法 FM-SIM を開発し、測定の妥当性を示した。等価回路モデルより、FM-SIM による測定値から金属-有機界面インピーダンスに関する回路定数を導出できることを数式的に示した。ペンタセン単一グレイン上と金電極との界面で評価を行うことで、界面インピーダンスが抵抗-容量並列回路で表されることを示した。

3. OFET における電極の自己組織化単分子膜 (SAM) 修飾による移動度向上要因の評価のために FM-SIM 測定を行った。動作中の電位プロファイル・電流同時測定から、要因はソース電極-チャネル界面に限定されることを示した。FM-SIM を用い、ソース電極-チャネル界面における界面導電性向上を直接観測し、さらに容量変化度合いから界面のトラップ減少によるものであることを明らかにした。

4. AFM を応用した、OFET の過渡応答評価が可能な電位応答の時間分解測定システムを構築し、ペンタセン単一グレインへのキャリア注入・排出過程を 1 ms オーダの時間分解能、50 nm 以下の空間分解能で可視化することに成功した。さらに、キャリア注入と排出で電位応答が非対称であることが単一グレイン一般で生じることを観測し、一般的な金属-有機界面の電子準位モデルが単一グレイン系にも成立することを明らかにした。

本論文は、以上のように有機薄膜トランジスタの金属-有機界面物性について多角的・体系的に評価しており、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 28 年 1 月 22 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。